jh190062-NAH

柳澤 将 （琉球大学・代表）、江川 隆輔（東北大学・副代表）

研究課題名
GW space-timeコードの大規模な有機-金属界面への適用に向けた高効率化
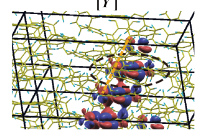
1. 研究背景・目的

有機エレクトロニクス材料物質の基礎電子物性の理解

- バンドギャップ・バンド分散の精密予測

ルブレン単結晶のバンド計算
(*GW*近似; *GW* space-time プログラム)

有効正孔質量 ($m_h{}^*/m_e$)

m_h/m_e	[Γ−Y]	[Γ−X]
DFT	1.00	2.15
GW	0.90	1.65
Exp.	0.65±0.1	
Exp.	0.8±0.1	1.9±0.3
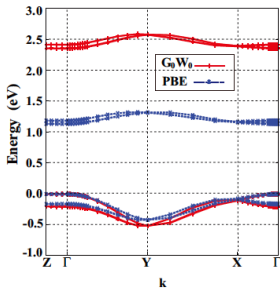
S. Y., Y. Morikawa, and A. Schindlmayr, Phys. Rev. B **88**, 115438 (2013)

- 結晶構造・分子配置とバンド構造の関係

- S. Y., K. Yamauchi, T. Inaoka, T. Oguchi, and I. Hamada, Phys. Rev. B **90**, 245141 (2014)
- S. Y., K. Okuma, T. Inaoka, and I. Hamada, J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom. **204**, 159 (2015).
- S. Y. and I. Hamada, J. Appl. Phys. **121**, 045501 (2017).
- S. Y. and I. Hamada, A Chapter in *Theoretical Chemistry for Advanced Nanomaterials - Functional Analysis by Computation and Experiment* (Springer Nature, October 2019).
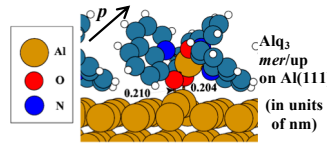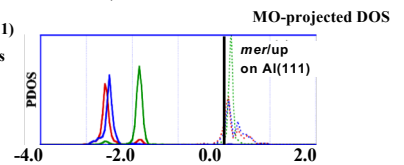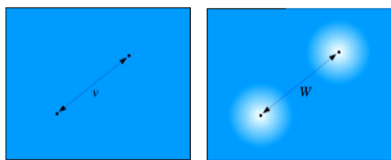
- 有機層と電極金属の界面

電荷（正孔・電子）の電極からの注入障壁の形成要因
- 界面での電荷移動、化学結合
- 電子密度分布の再構成

H. Ishii et al., Adv. Mater. **11**, 605 (1999).

金属フェルミ準位と有機層の最高占有・最低非占有(HOMO・LUMO) 準位の並び

S. Y. and Y. Morikawa,
J. Chem. Phys. **128**, 244704 (2008).

本研究の目的:
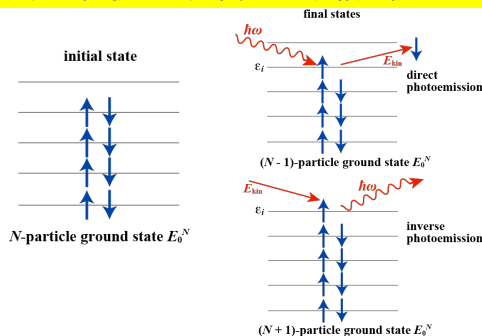有機ー金属界面での準位接続の予測の精密化のために *GW* 近似を適用できるよう、プログラムを大規模並列計算向けに高度化。

2. 理論

GW近似: 独立粒子模型・平均場近似に対し固体内のクーロン相互作用の遮蔽の効果を取り込む。

自己エネルギー Σ
$$\Sigma \approx GW$$
G: 1体グリーン関数

「裸の」クーロン相互作用v 　遮蔽相互作用W

光電子分光の実験での、準粒子の伝播に物理的に対応

有機層と電極金属の界面での準位接続の再現

- 有機層のHOMO-LUMOバンドギャップ

- 表面付近での鏡像ポテンシャルの効果
  $$\sim 1/4|z - z_0|$$
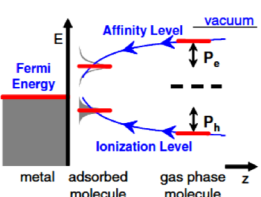
J. B. Neaton *et al*., Phys. Rev. Lett/ **97**, 216405 (2006).

3. 計算方法、プログラムの現状、予定

GW space-time 法

M. M. Rieger et al., Comput. Phys. Commun. **117**, 211 (1999).
L. Steinbeck et al., Comput. Phys. Commun. **125**, 105 (2000).
C. Freysoldt et al., Comput. Phys. Commun. **176**, 1 (2007).

$$W(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega) = \varepsilon^{-1}(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega)v(\mathbf{G},\mathbf{G}')$$

$$\Sigma(\mathbf{r},\mathbf{r}';i\tau) = iG(\mathbf{r},\mathbf{r}';i\tau)W(\mathbf{r},\mathbf{r}';i\tau)$$

$$P(\mathbf{r},\mathbf{r}';i\tau) = -2iG(\mathbf{r},\mathbf{r}';i\tau)G(\mathbf{r},\mathbf{r}';-i\tau)$$

畳み込み積分でなく、積を計算

$$\tilde{\varepsilon}_k(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega) = \delta_{GG'} - \frac{4\pi}{\|\mathbf{k}+\mathbf{G}\|\|\mathbf{k}+\mathbf{G}'\|}P_k(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega)$$

$$W_k(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega) = \frac{4\pi}{\|\mathbf{k}+\mathbf{G}\|\|\mathbf{k}+\mathbf{G}'\|}\tilde{\varepsilon}^{-1}(\mathbf{G},\mathbf{G}';i\omega)$$

- 高速フーリエ変換で$(\mathbf{r},\mathbf{r}')$と$(\mathbf{G},\mathbf{G}')$; $(i\tau)$と$(i\omega)$を切替
- 非局所な複素数の量を計算。必要メモリが大きい。

前年度までの実装の状況

- 誘電行列$\varepsilon_{GG'}$の逆行列化を、ScaLapackを使わず、$\mathbf{k}$と$i\omega$のグリッドについて、ノードに分配
- ノード内で逆行列化計算をタスク並列化（OpenMP）

Lapackのlibrary (ZHETRF/ZHETRI: Mathkeisan) の計測結果 (SX-ACE) 。タスク並列化なし、またはタスク並列化(2, 4スレッド)による20121次元の複素誘電行列のLU分解（ZHETRF）および逆行列化（ZHETRI）での経過時間。

	ZHETRF (秒)	ZHETRI (秒)
no OpenMP	181.3 (1.00)	361.1 (1.00)
OpenMP (2 threads)	99.2 (1.83)	234.5 (1.54)
OpenMP (4 threads)	57.5 (3.15)	194.9 (1.85)

- 表面などの計算のための効率的計算法の実装: クーロンカットオフ [S. Ismail-Beigi, Phys. Rev. B **73**, 233103 (2006)]

今年度の予定

- コードの総合的解析、全交換などの通信コストの軽減。

- 有機半導体の表面準位や、金属表面に物理吸着した分子の電子準位の再現を試みる。